



19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

12 Offenlegungsschrift  
18 DE 198 04 806 A 1

51 Int. Cl.<sup>6</sup>:  
C 07 C 5/09  
C 07 C 11/04  
B 01 J 12/00

21 Aktenzeichen: 198 04 806.8  
22 Anmeldetag: 6. 2. 98  
43 Offenlegungstag: 12. 8. 99

DE 198 04 806 A 1

71 Anmelder:  
Linde AG, 65189 Wiesbaden, DE

72 Erfinder:  
Heisel, Michael, Dr.-Ing., 82049 Pullach, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

- 54 Verfahren und Reaktor zur Hydrierung von Acetylen
- 57 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Hydrierung von in einem gasförmigen Einsatz enthaltenem Acetylen durch eine gekühlte exotherme katalytische Reaktion des Acetylen mit Wasserstoff zu Ethylen in parallel durchströmten, Katalysatorpartikel enthaltenden Reaktionszonen. Erfindungsgemäß werden die Reaktionszonen von gekühlten Trennwänden begrenzt und die Kühlung wird durch ein innerhalb der Trennwände strömendes Fluid bewerkstelligt.
- Die Erfindung betrifft außerdem einen Reaktor hierzu mit Katalysatorpartikeln zwischen gekühlten Trennwänden und Inertpartikeln zwischen gekühlten Trennwänden und/oder Inertpartikeln zwischen geheizten Trennwänden in mindestens einem Reaktorbehälter. Erfindungsgemäß werden die gekühlten und gegebenenfalls die beheizten Trennwände mit Metallplatten gebildet und in den Metallplatten sind Hohlräume in Form von Kanälen zur Aufnahme und zum Durchleiten mindestens eines Fluids angeordnet.

DE 198 04 806 A 1

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Hydrierung von in einem gasförmigen Einsatz enthaltenem Acetylen ( $C_2H_2$ ) durch eine gekühlte exotherme katalytische Reaktion des Acetylens mit Wasserstoff zu Ethylen ( $C_2H_4$ ) in parallel durchströmten Katalysatorpartikel enthaltenden Reaktionszonen. Die Erfindung betrifft außerdem einen Reaktor hierzu mit Katalysatorpartikeln zwischen gekühlten Trennwänden und Inertpartikeln zwischen gekühlten Trennwänden und/oder Inertpartikeln zwischen geheizten Trennwänden in mindestens einem Reaktorbehälter.

Innengekühlte Reaktoren können für eine Vielzahl von Reaktionen eingesetzt werden, insbesondere natürlich für Reaktionen mit starker Wärmetönung. Stand der Technik für die selektive  $C_2H_2$ -Hydrierung zu  $C_2H_4$  ist ein Reaktor mit Geradrohren, die außen gekühlt werden, z. B. durch Methanol bei ca.  $70^\circ C$ . Der Reaktor hat sich schon in vielen Fällen bewährt. Problematisch ist aber dabei, daß die Konstruktion des Wärmetauschers im Reaktor kompliziert und damit teuer ist. Für große Ethylenanlagen hat ein solcher Reaktor z. B. 5,5 m Durchmesser und enthält mehrere tausend Rohre, die mit Katalysator gefüllt sind. Mit dieser Größe ist die Baubareitsgrenze für diesem Typ Reaktor erreicht. Das entspricht einer Ethylenanlage von ca. 800 000 jato Kapazität bei Gasspaltung. Da Ethylenanlagen aber tendenziell immer größer gebaut werden, ist der Reaktor ein bottle neck. 2-Strängigkeit ist an dieser Stelle prohibitiv teuer.

Weitere Nachteile: Der Reaktor ist sehr aufwendig mit Katalysator zu befüllen und zu entleeren. Der Reaktor kann durchgehen, was gefährlich ist und zu Produktverlust führt. Häufig wird ein Nachreaktor zur  $C_2H_2$ -Feinreinigung eingesetzt, der i. a. ein ungekühlter Festbettreaktor ist und ebenfalls durchgehen kann, wobei  $C_2H_4$  weiter zu  $C_2H_6$  hydriert wird.

Aufgabe der Erfindung ist es daher das Verfahren zu vereinfachen und den gekühlten Reaktor einfacher, sicherer und billiger zu machen und seine Baubareitsgrenzen wesentlich in Richtung größerer Einheiten zu verschieben.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst von einem Verfahren mit den Merkmalen des Anspruchs 1 und von einem Reaktor mit den Merkmalen des Anspruchs 9 Ausgestaltungen der Erfindung sind Gegenstand von Untersprüchen.

Kennzeichnend an der Erfindung ist, daß beim Verfahren die Reaktionszeiten von gekühlten Trennwänden begrenzt werden und die Kühlung durch ein innerhalb der Trennwände strömendes Fluid bewerkstelligt wird und daß beim Reaktor die gekühlten und gegebenenfalls die beheizten Trennwände mit Metallplatten gebildet werden und in den Metallplatten Hohlräume in Form von Kanälen zur Aufnahme und zum Durchleiten mindestens eines Fluids angeordnet sind.

Durch die Trennwände werden auf sehr einfache Art und Weise separate Reaktionsräume geschaffen. Bei örtlichen Überreaktionen von  $C_2H_4$  zu Ethan mit entsprechend mehr Wärmeanfall kann durch die gekühlten Trennwände ein Übergreifen dieser unerwünschten Reaktionen auf die anderen Reaktionsräume verhindert werden. Der Aufbau eines Reaktors mit Metallplatten als Trennwänden und mit Kanälen in den Platten zum Kühlen oder Heizen ermöglicht eine flexible Ausstattung des Reaktors mit im Handel erhältlichen Pannelsen. Solche Plattentaucher sind wesentlich billiger herzustellen als in der Leistung entsprechende Geradrohrwärmetaucher. Da die Platten auch wesentlich weniger Bearbeitung brauchen, ist man in der Materialwahl weniger begrenzt. Insbesondere kann man Korrosionszuschläge leichter realisieren als bei Rohren. Besonders hochwertige

und teure Materialien, wie z. B. Hastelloy, sind als Bleche leichter zu bekommen als als Rohre.

Bei einer wichtigen Ausgestaltung des Verfahrens enthält der Einsatz überwiegend Ethylen und neben dem zu hydrierenden Acetylen den Wasserstoff, im Vergleich zu einer für die Hydrierung des Acetylens zu Ethylen benötigten Wasserstoffmenge, überstöchiometrisch. Dies ermöglicht eine selektive Hydrierung zu Ethylen. Trotz Wasserstoffüberschuß wird durch die Kühlung eine Hydrierung zu Ethan vermieden oder bei einem nicht bestimmungsgemäßen Betrieb durch die separat gekühlten Reaktionsräume verhindert, daß diese Reaktion auf den gesamten Einsatz übergreift. Bei der industriellen Gewinnung von reinem Ethylen wird so der Aufwand für eine aufwendige Trennung von Ethylen und Acetylen vermieden.

Im Einsatz kann eine Konzentration zwischen 100 und 10.000 mol ppm vorzugsweise zwischen 1000 und 5000 mol ppm vorliegen.

Der gasförmige Einsatz kann vor der katalytischen Reaktion durch indirekten Wärmeaustausch mit einem Fluid angewärmt werden. Die ist von Vorteil, wenn der Einsatz noch nicht die Anspringtemperatur für die katalytische Reaktion besitzt.

Der gasförmige Einsatz kann nach der katalytischen Reaktion durch indirekten Wärmeaustausch mit einem Fluid abgekühlt werden. Dadurch wird vorteilhafterweise eine Weiterreaktion des Einsatzes außerhalb des Reaktorraumes verhindert und damit sowohl die Selektivität als auch die Anlagensicherheit erhöht.

Eine Temperierung auf die Anspringtemperatur des Katalysators kann günstig in einer der Reaktionszone vorgeschalteten Zone durch ein innerhalb von Trennwänden strömendes Fluid vorgenommen werden, wobei die vorgeschaltete Zone zwischen den Trennwänden statt der Katalysatorpartikel Inertpartikel enthält. Der Vorteil besteht darin, daß die Temperierung des Einsatzgases unter gleich sicheren Bedingungen erfolgt wie die darauf folgende katalytische Reaktion.

Auch kann die Abkühlung in einer der Reaktionszone nachgeschalteten Zone durch ein innerhalb von Trennwänden strömendes Fluid vorgenommen werden, wobei die nachgeschaltete Zone zwischen den Trennwänden statt der Katalysatorpartikel Inertpartikel enthält. Die Abkühlung erfolgt so zeitlich und örtlich direkt nach der katalytischen Reaktion mit dem o. g. Vorteilen für die Selektivität der Reaktion und für die Anlagensicherheit.

Zum Temperieren des Einsatzgases, zur Kühlung der Reaktion und zur Abkühlung nach der Reaktion kann günstiger Weise Methanol, ein Thermoöl und/oder Kesselspeisewasser verwendet werden.

Für den Reaktor können jeweils mehrere Metallplatten, vorzugsweise senkrecht, mit Abstand voneinander zu einem Metallplattenpaket zusammengefügt werden und so einen Freiraum bilden, in den die Katalysatorpartikel oder die Inertpartikel geschüttet werden. Dies ist viel einfacher als beispielsweise viele Reaktionsrohre einzeln mit Katalysatorpartikeln zu befüllen.

Die Metallplattenpakete können aus ebenen, vorzugsweise parallel angeordneten Platten oder aus gekrümmten vorzugsweise als konzentrische Zylinder angeordneten Platten gebildet sein. Die Zylinder und Platten, auch Plattenpakete sind im Handel erhältlich, was sich sehr günstig auf die Fertigungszeiten von Reaktoren mit diesen Plattenpaketen auswirkt.

In einer bevorzugten Ausführung des erfindungsgemäßen Reaktors werden mehrere Metallplattenpakete so nebeneinander in Reaktorbehälter angeordnet, daß sie ein Modul aus Plattenpaketen bilden, in dem die Plattenpakete parallel vom

Einsatzgas durchströmt sind. Dies ist insbesondere in liegenden Behältern leicht zu verwirklichen, ohne an Baugrenzen zu stoßen, und es werden im Verfahren niedrige Druckabfälle ermöglicht.

Mindestens einem Modul mit Katalysatorpartikeln kann mindestens ein Modul mit Inertpartikeln in Durchleitungsrichtung des gasförmigen Einsatzgases vorgeschaltet und/oder nachgeschaltet sein. Mit solchen Modulen als Ersatzteilen können Wartungs- und Instandsetzungsarbeiten in wesentlich kürzerer Zeit und kostengünstiger als beispielsweise bei Röhrenreaktoren durchgeführt werden.

Es können auch mehrere Module entweder im gleichen Reaktorbehälter, vorzugsweise übereinander, oder in mehreren Reaktorbehältern angeordnet sein, die nacheinander vom Einsatzgas durchströmt werden. Auch können mehrere Module im gleichen Reaktorbehälter parallel vom Einsatzgas durchströmt sein. Zusammen mit der Wahlmöglichkeit zwischen stehenden und liegenden Reaktorbehältern kann der Reaktor so dem verfügbaren Platz und dem zulässigen Druckabfall im Reaktor optimal angepaßt werden.

Weitere Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens ergeben sich aus dem Zusammenwirken der Merkmale der Erfindung mit denen ihrer günstigen Ausführungsformen:

- Der Reaktormantel muß bei einer Kühlung mit verdampfendem Kesselspeisewasser nur den Druck des Einsatzgases aushalten, nicht den häufig wesentlich höheren Druck des Dampfes, der bei der Kühlung erzeugt wird.
- Der Reaktor ist wesentlich leichter als ein Reaktor nach dem Stand der Technik und kann aus Edelstahl gebaut werden, so daß die Probleme von C-Stahl entfallen.
- Die Kühlfläche pro Katalysatorvolumen ist in sehr weiten Grenzen frei wählbar.
- Weil die erfindungsgemäßen Reaktoren bei gleicher Leistung wesentlich leichter sind, werden Transport, Montage und Fundamente billiger als bei Reaktoren nach dem Stand der Technik.
- Baubarkeitsgrenzen und Sicherheitsdenken begrenzen die an einem Standort installierbaren Produktionskapazität nicht.

Die Erfindung wird anhand einer Ausführungsform mit einer Figur näher erläutert.

Die Figur zeigt schematisch eine Ausführung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit dem erfindungsgemäßen Reaktor.

Ein Einsatzgas **1** wird einem Reaktor **2** zugeführt der mit flüssigem Methanol **3** gekühlt wird, so daß dabei Methanol dampfförmig **4** anfällt. Das eingesetzte Gas **1**, Ethylen mit geringen Mengen Acetylen und mit Wasserstoff überstöchiometrisch verglichen mit einer zur Hydrierung des Acetylens zu Ethylen benötigten Menge, wird mit Hilfe eines Wärmeträgers **5**, der wiederum Methanol sein kann, in einem Anwärmmodul **6** mit vier Plattenpaketen **7** auf eine Anspringtemperatur der katalytisch exothermen Umsetzung des Acetylens zu Ethylen vorgewärmt und in einem anschließenden Reaktionsmodul **8** das Acetylen im Einsatz hydriert. Das bezüglich des Acetylens hydrierte Gas verläßt den Reaktionsmodul **8** des Reaktors **2** in Leitung **9** als Ethylenprodukt mit der gewünschten Reinheit oder das Ethylen wird weiterhin in der Figur nicht dargestellten Reinigungsschritten zugeführt. Der Anwärmmodul **6** und der Reaktionsmodul **8** sind in einem gemeinsamen Reaktorbehälter **10** angeordnet. Der Anwärmmodul **6** enthält Inertpartikel, der Reaktionsmodul **8** Katalysatorpartikel zwischen den Metallplatten.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zur Hydrierung von in einem gasförmigen Einsatz enthaltenem Acetylen durch eine gekühlte exotherme katalytische Reaktion des Acetylens mit Wasserstoff zu Ethylen in parallel durchströmten Katalysatorpartikel enthaltenden Reaktionszonen, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Reaktionszonen von gekühlten Trennwänden begrenzt werden und die Kühlung durch ein innerhalb der Trennwände strömendes Fluid bewerkstelligt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Einsatz überwiegend Ethylen und neben dem zu hydrierenden Acetylen den Wasserstoff, im Vergleich zu einer für die Hydrierung des Acetylens zu Ethylen benötigten Wasserstoffmenge, überstöchiometrisch enthält.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß im Einsatz eine Konzentration des Acetylens zwischen 100 und 10.000 mol ppm, vorzugsweise zwischen 1000 und 5000 mol ppm, vorliegt.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der gasförmige Einsatz vor der katalytischen Reaktion durch indirekten Wärmeaustausch mit einem Fluid auf eine Anspringtemperatur des Katalysators gebracht wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß der gasförmige Einsatz nach der katalytischen Reaktion durch indirekten Wärmeaustausch mit einem Fluid abgekühlt wird.
6. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß eine Temperierung auf die Anspringtemperatur des Katalysators in einer der Reaktionszone vorgeschalteten Zone durch ein innerhalb von Trennwänden strömendes Fluid vorgenommen wird, wobei die vorgeschaltete Zone zwischen den Trennwänden statt der Katalysatorpartikel Inertpartikel enthält.
7. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Abkühlung in einer der Reaktionszone nachgeschalteten Zone durch ein innerhalb von Trennwänden strömendes Fluid vorgenommen wird, wobei die nachgeschaltete Zone zwischen den Trennwänden statt der Katalysatorpartikel Inertpartikel enthält.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß zum Temperieren gemäß Anspruch 4 oder 6, zur Kühlung gemäß Anspruch 1 und/oder zur Abkühlung gemäß Anspruch 5 oder 7 als Fluid Methanol, ein Thermöl und/oder Kesselspeisewasser verwendet wird.
9. Reaktor zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 8 mit Katalysatorpartikeln zwischen gekühlten Trennwänden und Inertpartikeln zwischen geheizten Trennwänden in mindestens einem Reaktorbehälter, dadurch gekennzeichnet, daß die gekühlten und gegebenenfalls die beheizten Trennwände mit Metallplatten gebildet werden und in den Metallplatten Hohlräume in Form von Kanälen zur Aufnahme und zum Durchleiten mindestens eines Fluids angeordnet sind.
10. Reaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß jeweils mehrere Metallplatten, vorzugsweise senkrecht, mit Abstand voneinander zu einem Metallplattenpaket zusammengefügt werden und so einen Freiraum bilden, in den die Katalysatorpartikel oder die Inertpartikel geschüttet werden.
11. Reaktor nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet,

net, daß die Metallpalettenpakete aus ebenen, vorzugsweise parallel angeordneten Platten oder aus gekrümmten vorzugsweise als konzentrische Zylinder angeordneten Platten gebildet sind.

12. Reaktor nach Anspruch 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere Metallpalettenpakete so nebeneinander im Reaktorbehälter angeordnet sind, daß sie ein Modul aus Plattenpaketen bilden, in dem die Plattenpakete parallel vom Einsatzgas durchströmt sind.

13. Reaktor nach einem der Ansprüche 9 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens einem Modul mit Katalysatorpartikeln mindestens ein Modul mit Inertpartikeln in Durchleitungsrichtung des gasförmigen Einsatzgases vorgeschaltet und/oder nachgeschaltet ist.

14. Reaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere Module im gleichen Reaktorbehälter parallel vom Einsatzgas durchströmt sind.

15. Reaktor nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere Module entweder im gleichen Reaktorbehälter, vorzugsweise übereinander, oder in mehreren Reaktorbehältern angeordnet nacheinander vom Einsatzgas durchströmt sind.

---

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

---

25

30

35

40

45

50

55

60

65

- Leerseite -

Figur

